

Mössbauerexperimente am ^{73}Ge

von

Bernd H. Zimmermann
aus Dresden

1969



Digitized by the Internet Archive
in 2026

Mössbauerexperimente am ^{73}Ge

Der Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg

zur
Erlangung des Doktorgrades

vorgelegt von
Bernd H. Zimmermann
aus Dresden

Als Dissertation genehmigt von der Naturwissenschaftlichen
Fakultät der Universität Erlangen-Nürnberg



Tag der mündlichen Prüfung: 29. November 1967

Dekan: Prof. Dr. W. Haupt

Erstberichterstatter: Prof. Dr. H. Wegener

Zweitberichterstatter: Prof. Dr. E. Mollwo

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung

Einleitung

I. Grundlagen

1. Coulombanregung
2. Rückstoßimplantation und Strahlenschäden
3. Isomerieverschiebung
4. Debye-Waller-Faktor
5. Spezielle Probleme

II. Meßverfahren

1. Tandem-Van-de-Graaff-Beschleuniger
2. Meßkammer mit Target und Absorber
3. Elektronik zur Messung der Kernresonanzabsorption
4. Elektronik zur Messung der maximalen "
5. Elektronik zur Bestimmung des Untergrundkorrektur-
faktors

III. Meßergebnisse und Diskussion

1. Transmissionspektren der Absorber
2. Isomerieverschiebungen und ihre Deutung
3. Implantationsverhältnis und Debye-Waller-Faktoren
4. Diskussion der Halbwertsbreiten

Anhang

Zusammenfassung

Die Kernresonanzabsorption der 67,0 keV γ -Strahlung des ^{73}Ge wurde an den Absorbern kristallines Ge, Ge(II)Se , hexagonales GeO_2 und GeCr_9 gemessen. Die Bevölkering des 67,0 keV Niveaus erfolgte durch Coulombanregung mit einem unanalysierten Sauerstoffionenstrahl der Energien von 20 bis 30 MeV aus einem Tandem-Van-de-Graaff-Beschleuniger. Das Target bestand aus einer dünnen Schicht kristallinen Germaniums ($590 \mu\text{g}/\text{cm}^2$, ^{73}Ge 72,02 % angereichert), die auf eine dicke Chromunterlage aufgedampft war. Bei dem Anregungsprozeß erhalten die ^{73}Ge Kerne einen Rückstoß und werden zum Teil in das Chrom implantiert. Der Debye-Waller-Faktor einer solchen Quelle $\text{Cr}(^{73}\text{Ge}^*)$ erlaubt die Untersuchung der Resonanzabsorption bei der Temperatur des flüssigen Stickstoffs in Meßzeiten von einigen Stunden.

Gegen Germanium betrugen die Isomerieverschiebungen ($1,34 \pm 0,39$) mm/s für Ge(II)Se und $-(0,99 \pm 0,13)$ mm/s für hexagonales GeO_2 . Als Elektronenkonfiguration des Germaniumatoms darf $\text{Ge}(4s^1 4p^3)$ im kristallinen Germanium, $\text{Ge}(4s^0 4p^0)$ im hexagonalen GeO_2 und $\text{Ge}(4s^2 4p^0)$ im Ge(II)Se angenommen werden. Mit den zugehörigen berechneten relativistischen Elektronendichten am Kernort des ^{73}Ge ergab sich unter Verwendung der experimentellen Ergebnisse die relative Kernradiusänderung des ^{73}Ge beim Übergang vom angeregten Zustand in den Grundzustand zu $\delta R/R = (0,96 \pm 0,10) \times 10^{-3}$. Aus der maximalen Resonanzabsorption wurden die Debye-Waller-Faktoren des ^{73}Ge in den obengenannten Absorbern und in der Chromunterlage des Targets bestimmt.

Einleitung

Eine γ -Quelle aus Gasatomen sendet anstelle einer einzigen Spektrallinie ein durch den Rückstoß, den die Gasatome bei der γ -Emission erhalten, nach kleineren Frequenzen verschobenes, und wegen der thermischen Bewegung der Atome durch den Doppler-Effekt verschmiertes Frequenzspektrum aus.

Bei einer γ -Quelle aus Gasmolekülen werden Rückstoßeffect und Dopplerverschmierung kleiner. Dafür treten Nebenlinien im Spektrum auf, weil Rotationen und Vibrationen innerhalb des Moleküls bei der γ -Emission angeregt oder abgebremst werden können.

Im Kristall sind die emittierenden Atome fest gebunden und daher Rückstoßeffect und Dopplerverschmierung verschwindend klein. Nur Gitterschwingungen können angeregt und abgebremst werden. Das Frequenzspektrum der unverschobenen Hauptlinie besitzt Lorentzform, hat natürliche Linienbreite und eine temperaturabhängige relative Intensität $f(T)$, die auch Debye-Waller-Faktor genannt wird. Die Tatsache, daß es eine Hauptlinie gibt, wird Mössbauereffekt genannt. Die restliche relative Intensität $1 - f(T)$ verteilt sich auf die Nebenlinien als quasikontinuierlicher Untergrund, der das Spektrum der Gitterfrequenzen widerspiegelt.

Ein angeregter Atomkern im Kristall kann also ein γ -Quant aussenden ohne dabei den Kristallzustand zu ändern. Man spricht auch etwas irreführend von "rückstoßfreier" Emission.

Die Hauptlinie eignet sich zur Untersuchung der Kernresonanzfluoreszenz. Man benötigt dazu eine γ -Quelle und einen Absorber. Dabei müssen emittierende und absorbierende Atome von der gleichen Isotopenart sein. γ -Quanten der Hauptlinie besitzen dann die richtige Frequenz, um im Absorber absorbiert zu werden. Bewegt man nun den Absorber relativ zur Quelle, so "sehen" die absorbierenden Atome eine γ -Strahlung, deren Frequenz durch Doppler-Effekt verschoben ist. Wenn die Relativgeschwindigkeit groß genug ist, wird die Frequenz so falsch, daß keine Resonanzabsorption mehr stattfindet.¹⁰

In der vorliegenden Arbeit wird die rückstoßfrei emittierte γ -Strahlung von 67,0 keV des ^{73}Ge nach Durchgang durch einen geeigneten Kernresonanzabsorber in Abhängigkeit der Relativgeschwindigkeit zwischen Quelle und Absorber untersucht.

Resonante γ -Strahlung des ^{73}Ge konnte man durch Coulombanregung des 67,0 keV Niveaus mit 25 MeV O^{4+} Ionen und Kühlung des Targets (kristallines Germanium, ^{73}Ge 72,02 % angereichert) auf die Temperatur des flüssigen Stickstoffs erhalten.¹ Andere Niveaus, insbesondere das 13,5 keV $5/2^+$ Niveau wegen der hohen Lebensdauer von 4,6 μs und einem Konversionskoeffizienten $\alpha > 1300$, sind zu Mössbauerexperimenten ungeeignet. Das 67,0 keV Niveau wird weder durch β -Zerfall des ^{73}Ga noch durch K-Einfang des ^{73}As bevölkert. Der rückstoßfreie Anteil der emittierten Strahlung dieses Targets war jedoch klein.

Verwendet man hingegen ein Target, das aus einer dünnen Schicht kristallinen Germaniums besteht, die auf eine dicke Chromunterlage aufgedampft ist,² so werden durch Ionenbeschuß Germaniumatome in das Chrom gestoßen. Für die implantierten angeregten Kerne ist der rückstoßfreie Anteil der γ -Strahlung größer, so daß Transmissionsspektren geeigneter Resonanzabsorber für resonante γ -Strahlung in 10 bis 30 Stunden aufgenommen werden können.

Dabei kann man Höhe, Halbwertsbreite und energetische Lage der Resonanzabsorptionskurve und eventuelle Hyperfeinstrukturaufspaltungen bestimmen; darüber hinaus läßt sich die Abhängigkeit der maximalen Resonanzabsorption von der Absorber- oder Targettemperatur untersuchen. Aus den gewonnenen Daten ergeben sich Aussagen über die relative Kernradiusänderung des ^{73}Ge beim Übergang vom angeregten Zustand in den Grundzustand, über die Elektronendichten am Kernort des ^{73}Ge für verschiedene Elektronenkonfigurationen des Germaniumatoms in den Absorbern und über die Debye-Waller-Faktoren des ^{73}Ge im Target und Absorber.

Die im Folgenden beschriebenen Mössbauerexperimente wurden mit einer Quelle der geschilderten Art (Target Ger-

manium auf Chrom) mit folgenden Absorbern durchgeführt: Kristallines Ge, Ge(II)Se, hexagonales GeO_2 und GeCr_9 . Die Absorber Ge und GeO_2 wurden kurz vorher von der Oak Ridge Gruppe² gemessen. Die Oak Ridger Untersuchungen wurden von uns erweitert. Die Messungen der Absorber Ge(II)Se und GeCr_9 sind neu.

I. Grundlagen

1. Coulombanregung

Die Anregung von Kernen durch Beschuß mit geladenen Teilchen, deren Energie unterhalb des Coulomb-Walles liegt, erfolgt durch die elektromagnetische Wechselwirkung zwischen Projektil und Kern. Man bezeichnet sie als Coulombanregung. Die Theorie der Coulombanregung ist nicht Gegenstand dieser Arbeit. Sie findet sich in allen Einzelheiten in Ref. 3. Hier sei nur das Wichtigste erwähnt.⁴

Bei der Beschreibung der Coulombanregung treten einige charakteristische Parameter auf.

Der Coulombradius $R_C = Z_1 Z_2 e^2 / m_0 v_1^2$ - der kleinste Abstand bei zentralem Stoß - enthält Geschoß- und Kernladung $Z_1 e$ bzw. $Z_2 e$, die reduzierte Masse m_0 von Projektil und Kern und die Relativgeschwindigkeit v_1 zwischen Geschoß und Kern vor dem Stoß.

Der Parameter $\eta_1 = R_C / \lambda_1$ ist der Quotient aus Coulombradius und De Broglie Wellenlänge $\lambda_1 = \hbar / m_0 v_1$. Für $\eta_1 \gg 1$ sind klassische Bahnvorstellungen (Rutherfordstreuung) für das Geschoß erlaubt.

Der Adiabazitätsparameter $\xi = \eta_f - \eta_i$ gibt an, in wie weit der Streuvorgang elastisch verläuft.

Der Wirkungsquerschnitt für Coulombanregung setzt sich zusammen aus einem Wirkungsquerschnitt σ_E für elektrische Anregung und einem Wirkungsquerschnitt σ_M für magnetische Anregung. In den Wirkungsquerschnitten treten dieselben Matrixelemente auf, die auch die Emission und Absorption

von γ -Quanten beschreiben. Die Wirkungsquerschnitte lassen sich deshalb nach Multipolordnungen $E\lambda$ und $M\lambda$ klassifizieren. Außerdem gelten die üblichen Auswahlregeln der Multipolstrahlung. Die Wirkungsquerschnitte berechnen sich zu^{3,4}

$$(I1.1) \quad \sigma_E = \left(\frac{Z_1 e}{4\pi v_1}\right)^2 R_C^{-2\lambda+2} B(E\lambda, j_g \rightarrow j_a) f_{E\lambda}(\eta_1, \xi)$$

$$(I1.2) \quad \sigma_M = \left(\frac{Z_1 e}{4\pi c}\right)^2 \frac{v}{v_1} R_C^{-2\lambda+2} B(M\lambda, j_g \rightarrow j_a) f_{M\lambda}(\eta_1, \xi)$$

$B(E\lambda, j_g \rightarrow j_a)$ und $B(M\lambda, j_g \rightarrow j_a)$ sind die zu einem elektrischen bzw. magnetischen Übergang der Ordnung λ vom Grundzustand mit dem Spin j_g in den angeregten Zustand mit dem Spin j_a gehörigen reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten. Sie gehen aus den reduzierten γ -Emissionswahrscheinlichkeiten $B(\overset{E}{M}\lambda, j_a \rightarrow j_g)$ hervor:

$$(I1.3) \quad B(\overset{E}{M}\lambda, j_a \rightarrow j_g) = \frac{2j_g+1}{2j_a+1} B(\overset{E}{M}\lambda, j_g \rightarrow j_a)$$

$f_{E\lambda}$ und $f_{M\lambda}$ sind dimensionslose Funktionen, die in Ref. 3 für die wichtigsten Multipolordnungen tabelliert und für den "klassischen" Grenzfall $\eta_1 = \infty$ graphisch dargestellt sind. Es ist $f_{E\lambda} > f_{E(\lambda+1)}$, $f_{M\lambda} > f_{M(\lambda+1)}$, $f_{E\lambda} > f_{M\lambda}$.

Allgemein zeigt eine nähere Betrachtung der Formeln (I1.1) und (I1.2), daß die Wirkungsquerschnitte groß sind für schwere Geschosse hoher Ladung und Energie und daß - abgesehen von Unterschieden in den Matrixelementen - die Querschnitte für magnetische Anregung um den Faktor $(v/c)^2$ kleiner sind als die Querschnitte für elektrische Anregung.

Letzteres hat seine Ursache darin, daß das Magnetfeld des Projektils um den Faktor v/c schwächer ist als sein elektrisches Feld. Hierin besteht ein wesentlicher Unterschied zum Strahlungsfeld, in dem elektrisches und magnetisches Feld von gleicher Stärke sind. Dies macht verständlich, daß die γ -Emission eines Korns vorwiegend über $M1$, die Coulombanregung dagegen über $E2$ erfolgen kann, wenn die Auswahlregeln diese beiden Übergänge für das betrachtete Niveau zulassen. In der Tat werden alle bisher gemessenen Zustände, die über $E2$ Anregung erreicht werden können, unabhängig von ihrer Zerfallsweise auch wirklich über $E2$ an-

geregt. Da überdies für die unteren Niveaus der weitaus meisten Kerne auf Grund ihrer Spins und Paritäten eine elektrische Quadrupolanregung möglich ist, kommt dem Wirkungsquerschnitt σ_{E2} die größte praktische Bedeutung zu.

Die Ausbeute an γ -Quanten ist gegeben durch^{3,4}

$$(11.4) \quad A = n N \int_{E_0}^{E_0'} \sigma_{\text{tot}}(E) (dE/dx)^{-1} dE \frac{1}{1 + \alpha}$$

mit der Zahl N der ^{73}Ge Atome/Volumen, dem Teilchenstrom n auf das Target, dem totalen Wirkungsquerschnitt σ_{tot} für Coulombanregung, der Teilchenenergie E_0 beim Eindringen und E_0' beim Verlassen des Targets. dE/dx ist der differentielle Energieverlust auf der Wegstrecke dx , α der Konversionskoeffizient.

Der totale Wirkungsquerschnitt für Coulombanregung des 67,0 keV Niveaus des ^{73}Ge ist in guter Näherung durch σ_{E2} festgelegt. Der Übergang in den Grundzustand erfolgt im wesentlichen über $M1$ Strahlung oder durch Emission eines Konversionselektrons ($\alpha = 0,229$).^{5,6} Aus Coulombanregungsexperimenten mit α -Teilchen wurde für das 67,0 keV Niveau des ^{73}Ge $\frac{1}{1 + \alpha} B(E2, j_g = 9/2^+ \rightarrow j_a = 7/2^+) = 0,0473 \text{ e}^2 \times 10^{-48} \text{ cm}^4$ erhalten. Mit dem verwendeten Target und 25 MeV O^{4+} Ionen einer Stromstärke von 3 bis 5 μA , wie sie unser Tandem-Van-de-Graaff-Beschleuniger liefert, errechnet sich ein Wirkungsquerschnitt von $\sigma_{E2} \approx \sigma_{\text{tot}} \approx 90 \text{ mbarn}$ und damit eine γ -Ausbeute von etwa $2,4 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$. Unter Berücksichtigung des Raumwinkels erwartet man eine Zählrate von etwa 1000 s^{-1} im γ -Detektor.

Tatsächlich wurden 500 bis 1000 Impulse pro Sekunde im Fenster der zu untersuchenden Linie registriert. Bei unseren Mössbauerexperimenten betrug die maximale Kernresonanzabsorption 1 bis 2 %. Das Absorptionsspektrum wurde in einem 256-Kanalanalysator aufgenommen. Um eine zuverlässige Analyse zu gewährleisten, ist es geboten, einen statistischen Fehler von maximal 4 % pro Kanal zu verlangen. Mit der vorhandenen γ -Ausbeute konnte eine derartige Genauigkeit in Meßzeiten von 10 bis 30 Stunden erreicht werden.

2. Rückstoßimplantation und Strahlenschäden

Das Target bestand aus einer dünnen Schicht kristallinen Germaniums ($590 \mu\text{g}/\text{cm}^2$, ^{73}Ge 72,02 % angereichert), die auf eine Chromunterlage von 1 mm Dicke aufgedampft ist.²

Die folgenden Aussagen beziehen sich auf einen Strahl von 25 MeV O^{4+} Ionen.

Die Reichweite der Sauerstoffionen im Target beträgt 5 bis $6 \text{ mg}/\text{cm}^2$ und ist damit groß gegen die Germaniumschichtdicke.⁷ Das im Coulombfeld eines Targetkerns abgelenkte Sauerstoffion erfährt eine Impulsänderung, die auf das Targetatom als Rückstoß übertragen wird. Für die Germaniumatome ist die maximale Rückstoßenergie im Laborsystem 14,7 MeV. Etwa 25 eV sind nötig, um einen Gitterbaustein aus seinem Gitterplatz zu stoßen. Inelastisch gestoßene ^{73}Ge Kerne haben sämtlich solche Rückstoßenergien, daß sie mit Sicherheit ihren Gitterplatz verlassen.^{4,7}

Die Reichweite der rückgestoßenen ^{73}Ge Kerne im Germanium beträgt bis zu $2 \text{ mg}/\text{cm}^2$. Die Dicke der Germaniumschicht ist also kleiner als die Reichweite der angeregten ^{73}Ge Kerne. Die Kerne werden deshalb zum Teil in die Chromunterlage gestoßen. Diese Methode - durch Rückstoß bei Kernreaktionen Fremdatome in ein Wirtsgitter einzubauen - wird als Rückstoßimplantation bezeichnet.^{2,8,9} Die Größe $\eta = (\text{Zahl der angeregten implantierten Kerne})/(\text{Zahl der angeregten Kerne})$ heißt Implantationsverhältnis. Die Kenntnis von η ist zur Auswertung der experimentellen Ergebnisse nötig (siehe Abschnitt I4).

In Ref. 2 ist eine einfache Formel zur näherungsweisen Berechnung von η für einen Ionenstrahl bestimmter Energie gegeben. Für das verwendete Target, den vorhandenen Ionenstrahl (vgl. Abschnitt II1) und unter Berücksichtigung der Geometrie der Anordnung - der Teilchenstrahl trifft unter 45° auf das Target - erhält man $\eta = 0,71$. Das Experiment ergab unter Voraussetzung eines Spins $j_a = 7/2$ (vgl. Abschnitt I4) für das 67,0 keV des ^{73}Ge $\eta = 0,66 \pm 0,22$.

Die aus ihrem Gitterplatz geworfenen Atome werden wieder

abgebremst. Der Bremsprozeß geht in drei charakteristischen Stufen vor sich.^{33,34}

(1) Die Abbremsung von 10 MeV auf einige 10 keV geschieht hauptsächlich "elektronisch" in einer typischen Zeit von 5×10^{-12} s.^{28,35} Dabei nehmen diejenigen Hüllenelektronen der Nachbaratome Energie auf, deren Umlaufgeschwindigkeit auf der Bohrschen Bahn kleiner ist als die Geschwindigkeit des vorbeifliegenden Atoms. Die pro Atom übertragene Energie hat die Größenordnung 1 keV. Die Anregung von Gitterschwingungen durch elektrostatische Wechselwirkung mit den Atomkernen verbraucht nur etwa 3 eV und ist vernachlässigbar. Infolgedessen bewegt sich der gestoßene Atomkern - mit einer steigenden Anzahl von Elektronen - auf einer nahezu geradlinigen Bahn durch das Targetmaterial. Wegen der hohen Energieabgabe zu Beginn der Spur wird das Gitter dort lokal auf einige 10^4 °K erhitzt.¹⁰

(2) Unterhalb von einigen 10 keV geschieht die Abbremsung im wesentlichen durch Stöße mit den Gitterbausteinen ("Billard"). Ersetzungsstöße werden sehr wahrscheinlich (Ein Ersetzungsstoß liegt dann vor, wenn das Primäratom zentral genug mit einem Gitteratom stößt, so daß die dem Primäratom verbleibende kinetische Energie kleiner und die auf das Gitteratom übertragene Energie größer ist als die Schwellenergie zur Erzeugung eines stabilen Frenkelpaares). Infolge der geringen Energieabgabe ist die Wärmeentwicklung klein.

(3) Für kinetische Energien unterhalb von 1 keV existieren Rechnungen von Vineyard und Mitarbeitern.^{30,31,32} Sie betrachten einen Mikrokristall eines kubischen (bcc und fcc) Metallgitters, der etwa 10^3 Atome enthält, die mit realistischen Kräften untereinander wechselwirken. Auf die Atome an der Oberfläche des Mikrokristalls wirken zusätzliche Kräfte so, daß ein unendlich ausgedehnter Kristall simuliert wird. Ein sehr großer Computer integriert die klassischen Bewegungsgleichungen für alle Atome im Mikrokristall und verfolgt, wie sich die kinetische Energie des translätierenden Atoms im Kristall ausbreitet und wo die einzelnen Atome schließlich zur Ruhe kommen. Die Rechnun-

gen ergaben, daß in jedem untersuchten Fall das Primäratom über einen Ersetzungsstoß auf einem Gitterplatz zur Ruhe kam. Ein bis zwei Leerstellen können benachbart sein. Die gesamte Abbremszeit beträgt etwa 10^{-11} s.²⁸ Nach etwa der gleichen Zeit holt die Hitzewelle das Atom ein. Durch Wärmeableitung ist jedoch von der Hitze nicht mehr viel übrig geblieben.²⁸ Der Temperaturanstieg beträgt nur noch 1 bis 2 °K.

Unter der Annahme, daß ein aus seinem Gitterplatz geworfenes Germaniumatom der kinetischen Energie von z. B. 10 MeV durch den Abbremsvorgang stets in den von Vineyard untersuchten Bereich gelangt, scheint die Hoffnung berechtigt zu sein, daß im Chrom alle implantierten γ -emittierenden Germaniumatome auf einem normalen Gitterplatz in nicht-erhitzter Umgebung zur Ruhe kommen.

Nach im Mittel $(2,33 \pm 0,20) \times 10^{-9}$ s gehen dann die angeregten ^{73}Ge Kerne durch Aussendung eines γ -Quants in den Grundzustand über.⁶ Die Wahrscheinlichkeit dafür, daß das γ -Quant rückstoßfrei emittiert wird, hängt von der Bindung des Atoms im Kristall und von der Kristalltemperatur ab. Messungen an einem ^{73}Ge Target zeigten,^{1,2,11} daß für angeregte ^{73}Ge Kerne, die im Germanium zur Ruhe kommen, diese Wahrscheinlichkeit sehr klein ist ($\approx (9 \pm 2) \%$ bei 78 °K). Röntgenographische Untersuchungen der Germaniumschicht ergaben, daß durch den Schwerionenbeschuß das Germanium vom kristallinen in den amorphen Zustand übergeführt wurde.²

Für die in die Chromunterlage implantierten ^{73}Ge Kerne ist die Wahrscheinlichkeit für rückstoßfreie γ -Emission wesentlich größer.² Messungen an unserem Target ergaben $(11,1 \pm 2,9) \%$ bei 78 °K unter der Voraussetzung von $j_a = 7/2$.

Durch die Verwendung der Rückstoßimplantation gelingt es also, für einen Teil der angeregten ^{73}Ge Kerne die Wahrscheinlichkeit für rückstoßfreie γ -Emission erheblich zu erhöhen.

Um klare Aussagen zu erhalten, könnte man daran denken,

durch ein Koinzidenzexperiment nur die ^{73}Ge Kerne nachzuweisen, die mit Sicherheit in das Chrom implantiert worden sind. Dazu würde man einen Zähler im Rückwärtswinkel aufstellen und diejenigen 67,0 keV γ -Quanten registrieren, die mit rückgestreuten Sauerstoffionen koinzident sind, d. h. zu vorwärtsgestoßenen und daher implantierten ^{73}Ge Kernen gehören. Die Beschränkung auf einen Winkelbereich bedeutet aber einen Verlust an γ -Intensität und Festkörper-Ringzähler können wegen der hohen Teilchenströme (3 bis 5 μA) nicht eingesetzt werden (Die Lebensdauer eines solchen Zählers beträgt 10^8 bis 10^9 nachgewiesene Schwerionen).

Ein derartiges Experiment ist jedoch auch nicht notwendig. Wie in Abschnitt I4 gezeigt wird, kann nämlich die resonante 67,0 keV γ -Strahlung von ^{73}Ge Kernen aus der Germaniumschicht vernachlässigt werden gegenüber der aus der Chromunterlage.

3. Isomerieverschiebung

Die elektrostatische Wechselwirkung des Atomkerns mit den Hüllenelektronen am Kernort führt zu einer Änderung der Gesamtenergie des Atoms. Die Größe dieser Energieniveaushiftung hängt von dem Kernradius und von der Elektronendichte im Kern ab.

Sind die Kernradien im angeregten Zustand und Grundzustand des Kerns verschieden und haben wir ferner verschiedene Elektronendichten am Kernort von Quelle und Absorber - das ist der Fall, wenn sich Quelle und Absorber chemisch unterscheiden - so erhält man eine Energieverschiebung des Resonanzabsorptionsspektrums. Dieser Isomerieverschiebung entspricht eine Doppler-Geschwindigkeit von ^{10,12}

$$(13.1) \quad \delta = \left(\frac{e^2 Z R^2}{5 \epsilon_0 E_\gamma} \right) (Q_A - Q_Q) \left(\frac{\delta R}{R} \right)$$

wenn man Atomkerne als geladene Kugeln konstanter Ladungsdichte ansieht und von kleinen elliptischen Oberflächen-

deformationen absieht. Die rechte Seite dieser Gleichung besteht aus drei Faktoren. Von links nach rechts haben wir:

(1) Einen "konstanten Faktor", der die Lichtgeschwindigkeit c , die Ladungen e des Elektrons und Ze des Atomkerns, den Kernradius R , die Influenzkonstante ϵ_0 , und die Energie E_γ der rückstoßfrei emittierten γ -Quanten enthält.

(2) Einen "Hüllenfaktor", der die Differenz der relativistischen Elektronendichten am Kernort in Quelle und Absorber beschreibt.

(3) Einen "Kernfaktor", $\delta R/R = 2(R_a - R_g)/(R_a + R_g)$; wobei R_a bzw. R_g die Kernradien des angeregten Zustandes bzw. Grundzustandes bedeuten.

Zur Berechnung der Elektronendichten am Kernort kann ein relativistisches Hartree-Fock-Verfahren herangezogen werden.^{13,14} Für den CDC 1604-A Computer des ORNL, Oak Ridge, Tennessee, USA, existiert ein derartiges Programm,¹⁵ das in Fortran abgefaßt ist, und von der Oak Ridge Gruppe² zur Berechnung relativistischer Elektronendichten am Kernort des ^{73}Ge für verschiedene Elektronenkonfigurationen verwendet wurde.

Das Programm arbeitet nach der üblichen Hartree-Slater-Methode.^{13,14,15} Die Spin-Bahn- und die Spin-Spin-Wechselwirkung der Elektronen untereinander und mit dem Atomkern werden vernachlässigt. Die elektrostatische Wechselwirkung eines Elektrons mit den anderen Hüllenelektronen und dem Atomkern wird näherungsweise durch ein kugelsymmetrisches Zentralfeld dargestellt. Das Pauliprinzip wird durch ein Austauschpotential berücksichtigt, für welches als Näherung die Austauschenergie eines Elektronengases im konstanten Potential eingesetzt und das zum üblichen Hartree-Potential hinzugefügt wird. Mit diesem so gewonnenen Potential wird die Dirac-Gleichung (Einelektronenproblem) für jedes der Z Elektronen gelöst. Jede der Z Dirac-Differentialgleichungen läßt sich auf ein gekoppeltes Paar von Differentialgleichungen reduzieren, das nur noch radiale Komponenten der Wellenfunktion enthält. Um zu berücksichtigen, daß die Germaniumatome in ein Gitter ein-

gebaut sind, denkt man sich das Atom in eine Kugel einsperret (Wigner-Seitz-Kugel). Dann werden die in der Kugel auf 1 normierten radialen Einteilchenwellenfunktionen durch Grenzbedingungen auf der Kugeloberfläche festgelegt.¹⁶ Als Kugeldurchmesser wird der kürzeste Abstand zweier Germaniumatome gewählt.

Das gesamte System der Differentialgleichungen ist iterativ lösbar. Summation der Absolutquadrate der Radialteile aller Wellenfunktionen liefert die gesuchte relativistische Elektronendichte am Kernort des Germaniumatoms.

4. Debye-Waller-Faktor

Die Wahrscheinlichkeit dafür, daß das 67,0 keV γ -Quant eines ^{73}Ge Kerns im Target rückstoßfrei emittiert wird, soll im folgenden Debye-Waller-Faktor f_T genannt werden. Analog wird künftig als Debye-Waller-Faktor f_A die Wahrscheinlichkeit bezeichnet, mit der ein 67,0 keV γ -Quant durch einen ^{73}Ge Kern im Absorber rückstoßfrei absorbiert wird. Für unser Target gilt

$$(I4.1) \quad f_T(T_T) = \eta f_T^{\text{Cr}}(T_T) + (1 - \eta) f_T^{\text{Ge}}(T_T)$$

mit dem Implantationsverhältnis η und der Targettemperatur T_T . Der Exponent des Debye-Waller-Faktors soll im weiteren die Umgebung angeben, in der sich das ^{73}Ge Atom zur Zeit der γ -Emission bzw. γ -Absorption befindet. Nach den Ergebnissen unserer Messungen gilt

$$(I4.2) \quad \eta f_T^{\text{Cr}}(T_T) \gg (1 - \eta) f_T^{\text{Ge}}(T_T)$$

Für die maximale Kernresonanzabsorption M eines Absorbers folgt daher unter der weiteren Annahme, daß in der Quelle die Selbstabsorption vernachlässigbar ist und keine magnetische Hyperfeinstrukturaufspaltung und keine Quadrupolaufspaltung vorliegen^{10,17}

$$(I4.3) \quad M \approx \eta f_T^{\text{Cr}}(T_T) \left(1 - \exp\left(-\frac{N d \sigma_o f_A(T_A)}{2}\right) J_o\left(1 - \frac{N d \sigma_o f_A(T_A)}{2}\right)\right)$$

T_A ist die Absorbertemperatur, N die Zahl der ^{73}Ge Atome/Volumen, d die Absorberdicke und J_0 die Besselfunktion nullter Ordnung. Der maximale Wirkungsquerschnitt σ_0 für Resonanzabsorption ist durch die Energie der rückstoßfrei emittierten γ -Quanten, den Konversionskoeffizienten α und die Spins j_a und j_g des ^{73}Ge Kerns im angeregten Zustand und Grundzustand festgelegt.

Bei der Auswertung wurden $\alpha = 0,229$ und $j_g = 9/2$ verwendet.⁶ Der Spin j_a ist unbekannt. Jedoch konnten andere Werte als $11/2$ und $7/2$ ausgeschlossen werden.⁵ Neueste Messungen lassen auch $j_a = 11/2$ als unglaublich erscheinen.²⁸

Wenn sich die Gitterschwingungen eines Kristalls durch das Debye-Modell beschreiben lassen, gilt¹⁰

$$(I4.4) \quad f(T) = \exp\left(-\frac{E_\gamma^2}{2Mc^2} \frac{3}{2k\theta} \left(1 + 4\left(\frac{T}{\theta}\right)^2 \int_0^{\theta/T} \frac{x dx}{\exp x - 1}\right)\right)$$

mit der Debye-Temperatur θ , der Energie E_γ der resonanten γ -Quanten, der Ruheenergie Mc^2 des ^{73}Ge Atoms und der Boltzmannkonstanten k .

Wenn man für die Debye-Waller-Faktoren f_T^{Gr} und f_A in (I4.3) die Temperaturabhängigkeit aus (I4.4) einsetzt, ist der theoretische Zusammenhang der maximalen Kernresonanzabsorption mit der Target- und Absorbertemperatur gegeben.

5. Spezielle Probleme

a) Untergrundstrahlung

Außer der erwünschten 67,0 keV γ -Strahlung erzeugen die Geschosse im Target auch charakteristische Röntgenstrahlung und Ionenbremsstrahlung. Die Ionenbremsstrahlung ist zur Hauptsache Dipolstrahlung und gegenüber dem Wirkungsquerschnitt für Coulombanregung vernachlässigbar.⁴ Die Bindungsenergien für Elektronen der K-Schale liegen für Germanium und Chrom unterhalb 12 keV. Der Wirkungsquerschnitt für die Ionisation der K-Schale hat in beiden Fällen die Größenordnung 10^3 barn und ist damit wesent-

lich größer als der Wirkungsquerschnitt für Coulombanregung.³ Bei Verwendung eines Szintillationszählers mit einem 3 Zoll $\varnothing$ x 1 Zoll NaJ(Tl) Kristall als γ -Detektor macht sich im Energiebereich der 67,0 keV Strahlung weder charakteristische Röntgenstrahlung (starke Absorption im Absorber) noch γ -Strahlung angeregter Niveaus von Germanium- und Chromisotopen störend bemerkbar.

b) Targetkühlung

Wegen der Temperaturabhängigkeit der rückstoßfreien γ -Emission ist es nötig, das Target auf die Temperatur des flüssigen Stickstoffs (78°K) zu kühlen, um einen genügend großen Debye-Waller-Faktor zu erhalten. Kühlprobleme treten dadurch auf, daß durch den Ionenbeschuß dem Target eine Leistung von etwa 25 Watt zugeführt wird, die weggekühlt werden muß.

II. Meßverfahren

1. Tandem-Van-de-Graaff-Beschleuniger

Der erforderliche Sauerstoffionenstrahl wurde von dem Erlanger Tandem-Van-de-Graaff-Beschleuniger geliefert. Die Erzeugung von Sauerstoffionen machte folgende Änderungen an der vorhandenen Ionenquelle nötig.²⁹ Das Duoplasmatron wurde mit Luft als Füllgas betrieben. Als Heizfaden wurde ein Platinnetz mit 5 % Rhodiumzusatz und einer Maschen-dichte von 1024 Maschen/cm² verwendet. Ein Streifen von 7 cm x 3 cm wurde der Länge nach zu einem Schlauch gerollt, einmalig in eine Suspension von Strontiumkarbonat und Amyl-azetat getaucht, getrocknet, ausgeheizt und eingebaut. Tantale- und Nickelheizfäden hatten eine Lebensdauer von nur einigen Stunden, gegenüber etwa drei Tagen bei Verwendung eines Platinnetzes.

Die mit -40 kV Ziehspannung extrahierten positiven Sauerstoffionen wurden in Ammoniak umgeladen und mit einer

Energie von 80 keV in den Beschleuniger eingeschossen. Um den Targetstrom zu erhöhen, wurde ein unanalysierter Strahl verwendet. Die Betriebsbedingungen wurden so eingestellt, daß bei einer Beschleunigungsspannung von 5 MV ein Targetstrom von 3 bis 5 μA erhalten wurde. Dieser Strahl bestand aus ca. 40 % O^{3+} , 45 % O^{4+} und 15 % O^{5+} mit den Energien 20, 25 bzw. 30 MeV. Die Verwendung eines solchen Strahles verschiedener Energien ist ohne Bedeutung für das Meßverfahren, da die Coulombanregung nur als "γ-Fabrik" benutzt wird.

Alle hier beschriebenen Experimente wurden unter gleichen Betriebsbedingungen des Beschleunigers durchgeführt. Das Implantationsverhältnis η war deshalb für alle Messungen gleich groß.

2. Meßkammer mit Target und Absorber

Der Ionenstrahl traf horizontal in die Meßkammer und unter 45° auf das Target.¹⁸ Im Targetraum herrschte ein Druck von $< 10^{-5}$ Torr. Durch eine Kühlfalle mit flüssigem Stickstoff über der Öldiffusionspumpe wurde verhindert, daß sich Kohlenwasserstoffe auf dem Target niederschlagen. Das Target ist in einen Kupferblock eingelötet, der über den Boden der Kühlfalle mit flüssigem Stickstoff gekühlt wird. Besondere Sorgfalt wurde darauf verwendet, daß der Kupferblock fest an den Boden der Kühlfalle gepreßt ist. Durch den auftreffenden Ionenstrahl wurde dem Target eine Leistung von etwa 25 Watt zugeführt. Im Betrieb stellte sich eine Targettemperatur von 80 bis 89 °K ein. Als Target wurde eine Schicht kristallinen Germaniums von $590 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ (^{73}Ge 72,02 % angereichert) verwendet, die auf eine dick verchromte Kupferscheibe von 25,4 mm $\varnothing$ und 1 mm Dicke aufgedampft ist.

Der Antrieb bestand aus einem Hohlzylinder, dessen Achse mit der Verbindungslinie Targetmitte-Detektormitte zusammenfällt, und einer Halterung, an der dieser Zylinder über 2 mal 3 radial angeordnete Blattfedern befestigt ist. Die jeweiligen Resonanzabsorber hatten einen Durchmesser von

36 mm und wurden in einer dünnen Aluminiumschachtel verpackt in das Rohr eingeschraubt. Der Hohlzylinder war starr mit 3 Magnetkernen verbunden, die in 3 an der Halterung befestigte Spulen eintauchten. Die Erzeugung einer sinusförmigen Schwingung des Rohres und Absorbers geschah durch eine Wechselspannung nach Art der Anregung eines dynamischen Lautsprechers. An einer vierten Spule konnte ein der Geschwindigkeit proportionales Induktionssignal abgenommen werden.

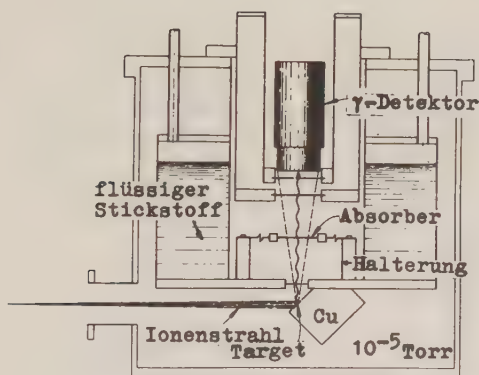


Abb. 1: Schematische Darstellung der Meßkammer

Absorber und Antrieb sind im allgemeinen auf 78 °K gekühlt und befinden sich in einem gesonderten Raum. Target und Absorber können elektrisch geheizt werden. Damit hat man die Möglichkeit die maximale Resonanzabsorption als Funktion der Target- oder Absorberrtemperatur zu untersuchen. Der Absorberrraum wurde mit trockenem Stickstoff gefüllt. Bei einem Druck von 1 bis 3 Atmosphären war der unvermeidbare Temperaturgradient im Absorber minimal. - Der γ-Detektor ist durch einen evakuierten Zwischenraum gegen den Absorberrraum thermisch isoliert.

Model 2460 A) verstärkt wird. Zur Erzeugung einer stabilen Schwingung wird ein Teil des Induktionssignals auf die Antriebsspule rückgekoppelt (Gegenkopplung). Da der Vielkanalanalysator VKA1 (Nuclear Data Inc., Model ND-130 AT) nur negative Impulse im Analog-Digital-Converter ADC verarbeitet, wird eine negative Vorspannung addiert (BIAS), bevor die geschwindigkeitsproportionale Spannung auf den ADC des Vielkanalanalysators gegeben wird.

Die γ -Quanten wurden durch einen Szintillationszähler SZ mit einem 3 Zoll $\varnothing$ x 1 Zoll NaJ(Tl) Kristall registriert. Die Ausgangsimpulse des γ -Detektors gelangen über den Linearverstärker LV (ORTEC, Multimode Amplifier, Model 410) auf die Einkanaldiskriminatoren EKD1 und EKD2 (ORTEC, Strobbed Single Channel Analyser, Model 413). Das Fenster des EKD1 blendet die 67,0 keV γ -Strahlung des ^{73}Ge einschließlich ihres Untergrundes aus, das Fenster des EKD2 einen Teil des höherenergetischen Untergrundes. Ein Ausgangsimpuls des EKD1 bzw. EKD2 erzeugt am OR GATE einen Impuls, der auf das gate des VKA1 gelangt. Gleichzeitig liefert das AND GATE 1 bzw. AND GATE 2 ein "routing" signal, das in die erste bzw. zweite Gedächtnishälfte des VKA1 einzählen läßt. In welchen Kanal der beiden Gedächtnishälften einsortiert wird, ist durch den Momentanwert der geschwindigkeitsproportionalen Spannung gegeben, die am ADC des Vielkanalanalysators liegt.

Durch die geschilderte Anordnung erhält man in der ersten und in der zweiten Gedächtnishälfte je eine U-förmige Geschwindigkeitsverteilung,⁺ der in der ersten Hälfte multiplikativ das Transmissionsspektrum überlagert ist. Man dividiert die Anzahl der Impulse entsprechender Kanäle der ersten Gedächtnishälfte durch die der zweiten und erhält so nach Normierung und Berücksichtigung des Untergrundkorrekturfaktors (vgl. Abschnitt II5 und Anhang) das Transmissionsspektrum des Resonanzabsorbers als Funktion der zur Kanalnummer proportionalen Absorbergeschwindigkeit.

+) Diese U-Form rührt davon her, daß der Antrieb sinusförmig schwingt und bei höheren Geschwindigkeiten also länger verweilt (Schenkel des U).

4. Elektronik zur Messung der maximalen Kernresonanzabsorption

Um nur die maximale Kernresonanzabsorption zu bestimmen, genügt es, die γ -Quanten nach Durchgang durch einen Resonanzabsorber bei relativen Geschwindigkeiten $v = 0$ und $v = \infty$ zu zählen. Hierbei bedeutet $v = \infty$ eine Geschwindigkeit, die so groß gewählt wird, daß keine Kernresonanzabsorption auftritt (Im Falle des Germaniumabsorbers ließ man den Absorber sinusförmig mit Maximalgeschwindigkeiten von 40 bis 50 mm/s schwingen). Abbildung 3 zeigt ein Blockschaltbild der verwendeten Elektronik. Abweichend von der in Abschnitt II3 beschriebenen Anordnung ist der Vielkanalanalysator VKA1 durch vier Zählgeräte ersetzt worden.

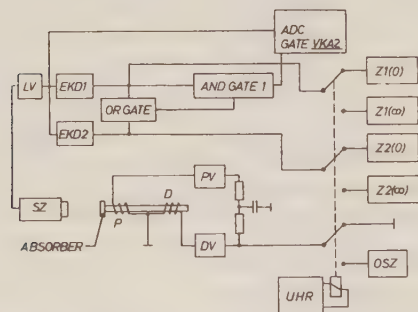


Abb. 3: Blockschaltbild der Elektronik zur Messung der maximalen Kernresonanzabsorption

Das Fenster des Einkanaldiskriminators EKD1 blendet die 67,0 keV γ -Strahlung des ^{73}Ge einschließlich ihres Untergrundes aus, das Fenster des EKD2 einen Teil des höherenergetischen Untergrundes. Bei $v = 0$, realisiert durch Öffnen und Erden der Verbindung zum Oszillator, werden

die Ausgangsimpulse des EKD1 bzw. EKD2 in den Zählgeräten Z1(0) bzw. Z2(0) registriert. Bei $v = \infty$ wird in die Zählgeräte Z1(∞) und Z2(∞) eingezählt. Um den Einfluß von Schwankungen der Strahlstromstärke klein zu halten, wurde abwechselnd je 1 s bei $v = 0$ und $v = \infty$ gemessen. Die Umschaltung von Antrieb und Zählgeräten erfolgte automatisch von einer UHR.

Tritt maximale Kernresonanzabsorption bei $v = 0$ ein und bezeichnen wir die Zahl der Impulse nach z. B. 30 Minuten Meßzeit in Zählgerät Z1(0), Z2(0), Z1(∞), Z2(∞) mit N1(0), N2(0), N1(∞), N2(∞), so stellt die Größe

$$(II.4.1) \quad 1 - \frac{N1(0)/N2(0)}{N1(\infty)/N2(\infty)}$$

nach Multiplikation mit dem Untergrundkorrekturfaktor die gewünschte maximale Kernresonanzabsorption dar.

5. Elektronik zur Bestimmung des Untergrundkorrekturfaktors

Zur Bestimmung des Untergrundkorrekturfaktors $1 = (\text{echte } 67,0 \text{ keV Strahlung} + \text{Untergrund, im Fenster des EKD1}) / (\text{echte } 67,0 \text{ keV Strahlung im Fenster des EKD1})$ werden die Ausgangsimpulse des γ -Detektors auf den ADC des Vielkanalanalysators VKA2 (Nuclear Data Inc., Model ND 130-AT) gegeben (siehe Abbildungen 2 und 3). Mit Hilfe der Ausgangsimpulse am AND GATE 1 gelangen die Eingangsimpulse des Einkanaldiskriminators EKD1 in die zweite Hälfte des Gedächtnisses.

Wenn kein routing signal erscheint, wird automatisch in die erste Hälfte eingezählt. Der Kanal, in den einsortiert wird, ist durch die Impulshöhe des Detektorausgangsimpulses bestimmt.

Addition beider Hälften liefert ein komplettes γ -Spektrum. Die gleichzeitige Registrierung von Fenster und γ -Spektrum ermöglicht auch bei einem Driften von Fenster oder γ -Spektrum eine genügend genaue Untergrundkorrektur des Transmissionsspektrums (siehe Programm I im Anhang).

III. Meßergebnisse und Diskussion

1. Transmissionsspektren der Absorber

Die Kernresonanzabsorption der Absorber kristallines Ge, Ge(II)Se und hexagonales GeO₂ für die rückstoßfrei emittierte 67,0 keV γ -Strahlung des ^{73}Ge wurde als Funktion der relativen Geschwindigkeit zwischen Target und Absorber gemessen. Die Absorberdicken waren 250 μ , 276 μ , bzw. 191 μ natürliches Germanium. Die Germaniumverbindungen wurden in Pulverform verwendet. Der Germaniumabsorber bestand aus einer Scheibe, die parallel zur (111)-Ebene eines Einkristalles geschnitten wurde.

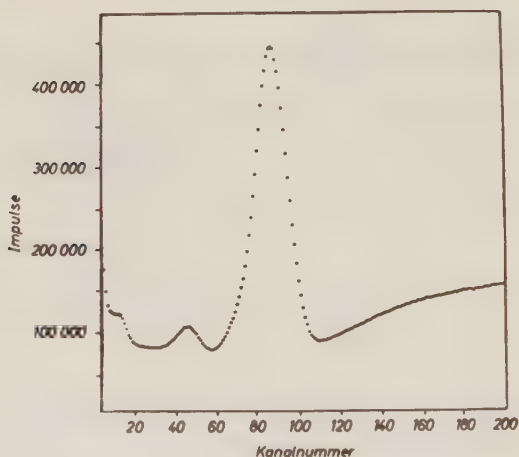


Abb. 4: γ -Spektrum von ^{73}Ge

Die verwendete Elektronik ist in Abschnitt II3 und II5 beschrieben. Abbildung 4 zeigt ein typisches γ -Spektrum von ^{73}Ge nach Addition entsprechender Kanäle beider Gedächtnis-

nishälften des Vielkanalanalysators VKA2. Es enthält einen photopeak bei 67,0 keV und einen escape peak bei 38,5 keV. Der Untergrund, auch unter der 67,0 keV Linie, wird nicht resonant absorbiert. Dies muß durch eine Untergrundkorrektur der Transmissionsspektren berücksichtigt werden.¹⁸ Der Korrekturfaktor wurde mit Hilfe eines Programmes an dem Computer PDP-7 (Digital Equipment Corp., Maynard, Mass.) errechnet. Die Auswertung ist im Anhang beschrieben (Programm I). Die Abbildungen 5, 6 und 7 zeigen die Transmissionsspektren der Absorber kristallines Ge, Ge(II)Se und hexagonales GeO₂ nach Meßzeiten von 10 bis 30 Stunden.

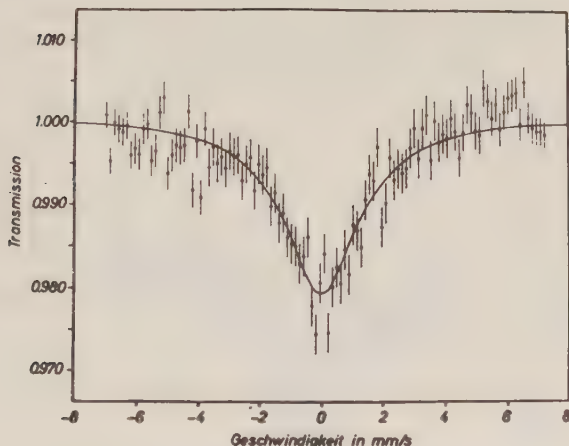


Abb. 5: Transmissionsspektrum von kristallinen Ge nach der Untergrundkorrektur

Die eingezeichneten Meßpunkte wurden durch Division entsprechender Kanäle der ersten Gedächtnishälfte des Vielkanalanalysators VKA1 durch die zweite, anschließende Normierung, Fehlerberechnung und Untergrundkorrektur an der

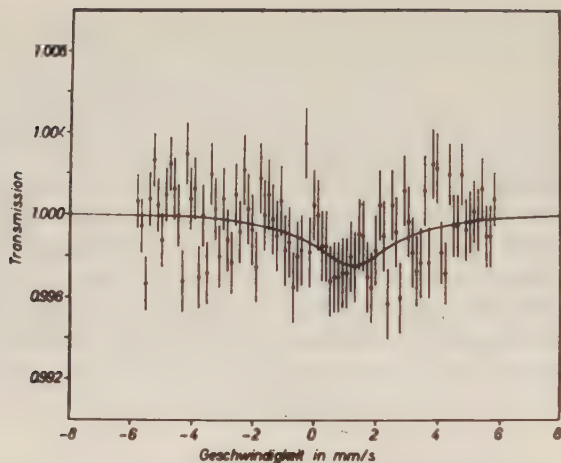


Abb. 6: Transmissionsspektrum von Ge(II)Se nach der Untergrundkorrektur

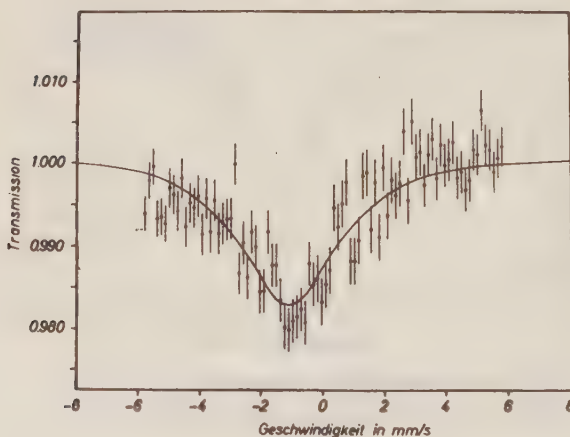


Abb. 7: Transmissionsspektrum von hexagonalem GeO₂ nach der Untergrundkorrektur

PDP-7 (Programm II, Anhang) gewonnen. Die Spektren zeichnete der Digital Incremental Plotter, Model 565 (Calcomp Inc., Anaheim, Ca.), in Verbindung mit dem Computer LGP 21 (Euro-

comp, Minden), der in elementarer Maschinensprache programmiert war.

Zur Geschwindigkeitseichung der Abszisse wurde das Hyperfeinstrukturspektrum von ^{57}Fe in metallischem Eisen gemessen. Die Eichung hat eine Genauigkeit von 3,5 %. Diese Messung war gleichzeitig ein Test für die Geschwindigkeitsauflösung des Antriebs. Mit einer ^{57}Co Quelle (diffundiert in Kupfer) und einem Absorber von 25μ dickem "Armco-Iron"

Absorber	Ge	GeSe	GeO ₂
Linienhöhe in %	$-2,13 \pm 0,17$	$-0,252 \pm 0,065$	$-1,86 \pm 0,18$
Linienlage in mm/s	$-0,09 \pm 0,08$	$1,25 \pm 0,38$	$-1,07 \pm 0,11$
Halbwertsbreite in mm/s	$2,97 \pm 0,27$	$3,46 \pm 1,79$	$3,98 \pm 0,56$
Normierung	$1,00000 \pm 0,00067$	$1,00000 \pm 0,00062$	$1,00000 \pm 0,00146$

Tabelle 1: Parameter der gefitteten Lorentzkurve

wurde eine Linienbreite kleiner 0,45 mm/s gemessen. Die Verwendung eines $\text{Na}_2(\text{Fe}(\text{CN})_5\text{NO} \cdot 2 \text{H}_2\text{O})$ Absorbers legte das Vorzeichen von der Geschwindigkeit fest (bekannte Isomerieverschiebung von $-(4,83 \pm 0,01)$ mm/s).¹⁹

Die Kurvenform der Transmissionsspektren läßt sich bei den verwendeten Target- und Absorberdicken in guter Näherung durch eine Lorentzkurve wiedergeben.¹⁷ Die eingezeichneten Kurven wurden durch einen least-squares-fit

an der PDP-7 (Programm III, Anhang) durch Variation sämtlicher Lorentzkurvenparameter gewonnen: Linienhöhe, Linienlage, Halbwertsbreite und Normierung. Die endgültigen Parameter sind in Tabelle 1 wiedergegeben. Die zugehörigen Fehler sind mittlere Fehler und ergeben sich aus der Statistik der Meßpunkte.

Die Ergebnisse der Messungen an kristallinem Ge und hexagonalem GeO_2 stimmen mit kürzlich durchgeführten Messungen der Oak Ridge Gruppe überein.²

2. Isomerieverschiebungen und ihre Deutung

Die Abweichungen der Linienlagen von $\nu = 0$ lassen sich als Isomerieverschiebungen deuten. Durch einen Vergleich der Absorber untereinander kann die Elektronendichte in ^{73}Ge Kernen des Targets eliminiert werden. Man erhält dann folgende Isomerieverschiebungen

GeSe gegen Ge	$\delta_1 = +(1,34 \pm 0,39) \text{ mm/s}$
GeO_2 gegen Ge	$\delta_2 = -(0,99 \pm 0,13) \text{ mm/s}$
GeSe gegen GeO_2	$\delta_3 = +(2,33 \pm 0,40) \text{ mm/s}$

Reines kristallines Ge hat ein Diamantgitter.²⁰ Jedes Germaniumatom ist tetraedrisch von vier gleichartigen Nachbarn umgeben. Wegen des kovalenten Bindungscharakters nimmt man eine Elektronenkonfiguration des Germaniumatoms

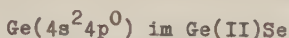
$\text{Ge}(4s^1 4p^3)$ im kristallinen Ge

und eine Bindung über sp^3 hybrid orbitals an.²⁶

Hexagonales GeO_2 hat ein α -Quartz Gitter.²⁰ Jedes Germaniumatom ist tetraedrisch von vier Sauerstoffatomen umgeben. Pauling gibt als Elektronegativitäten $E(\text{Sauerstoff}) = 3,5$ und $E(\text{Germanium}) = 1,7$ an.²¹ Infolge der großen Differenz $E(\text{Sauerstoff}) - E(\text{Germanium}) = 1,8$ ist zu erwarten, daß die Bindung hauptsächlich durch Ionenbindung zustande kommt und somit näherungsweise eine Elektronenkonfiguration des Germaniumatoms

$\text{Ge}(4s^0 4p^0)$ im hexagonalen GeO_2

vorliegt. - Ge(II)Se kristallisiert in einem verzerrten Natriumchloridgitter.²⁰ Das Vorliegen eines so typischen Ionengitters läßt eine Ionenbindung mit einer Elektronenkonfiguration des Germaniumatoms



erwarten.

Theoretisch können die Isomerieverschiebungen δ_i $i = 1 \dots 3$ also angesetzt werden als (vgl. Abschnitt I3)

$$\delta_1^{\text{theor.}} = \frac{ce^2 Z R^2}{5 \epsilon_0 E_\gamma} (Q_{\text{Ge}(4s^2 4p^0)} - Q_{\text{Ge}(4s^1 4p^3)}) \frac{\delta R}{R}$$

$$\delta_2^{\text{theor.}} = \frac{ce^2 Z R^2}{5 \epsilon_0 E_\gamma} (Q_{\text{Ge}(4s^0 4p^0)} - Q_{\text{Ge}(4s^1 4p^3)}) \frac{\delta R}{R}$$

$$\delta_3^{\text{theor.}} = \frac{ce^2 Z R^2}{5 \epsilon_0 E_\gamma} (Q_{\text{Ge}(4s^2 4p^0)} - Q_{\text{Ge}(4s^0 4p^0)}) \frac{\delta R}{R}$$

Die relativistischen Elektronendichten am Kernort des ^{73}Ge wurden für die verschiedenen Elektronenkonfigurationen des Germaniumatoms am CDC 1604-A Computer des ORNL, Oak Ridge, Tennessee, durch Hartree-Slater-Rechnungen unter Verwendung eines Kernradius von $R = 4,60 \text{ f}$ und eines Wigner-Seitz-Radius $r_0 = 1,22 \text{ \AA}$ ermittelt (kürzester Abstand zweier Germaniumatome im Germaniumgitter ist $2r_0$)^{22,13,14,15,16}

Es ergab sich $Q_{\text{Ge}(4s^1 4p^3)} = 5156,0 \times 10^{25} \text{ cm}^{-3}$. Die Werte für $Q_{\text{Ge}(4s^0 4p^0)}$ und $Q_{\text{Ge}(4s^2 4p^0)}$ liegen um $8,1 \times 10^{25} \text{ cm}^{-3}$ tiefer bzw. um $16,1 \times 10^{25} \text{ cm}^{-3}$ höher.

Ein least-squares-fit der gemessenen Isomerieverschiebungen δ_i mit den theoretischen Werten $\delta_i^{\text{theor.}}$ $i = 1 \dots 3$ durch Variation des Parameters $\delta R/R$, liefert als relative Kernradiusänderung des ^{73}Ge beim Übergang vom angeregten Zustand in den Grundzustand

$$\delta R/R = (0,96 \pm 0,10) \times 10^{-3}$$

Dieser Wert ist in Übereinstimmung mit dem von der Oak Ridge Gruppe angegebenen $\delta R/R = 1 \times 10^{-3}$.² Die gefitteten Werte sind mit den gemessenen verträglich, die An-

nahme von $\text{Ge}(4s^1 4p^2)$ im kristallinen Ge, $\text{Ge}(4s^0 4p^0)$ im hexagonalen GeO_2 und $\text{Ge}(4s^2 4p^0)$ im Ge(II)Se^+ ist also berechtigt.

3. Implantationsverhältnis und Debye-Waller-Faktoren

Mit dem Germaniumabsorber wurde nach dem in Abschnitt II4 und II5 beschriebenen Verfahren die maximale Resonanzabsorption

- a) als Funktion der Absorbertemperatur T_A bei konstanter Targettemperatur $T_T = 89^\circ \text{K}$
- B) als Funktion der Targettemperatur T_T bei konstanter Absorbertemperatur $T_A = 78^\circ \text{K}$

gemessen.

Wenn man annimmt, daß die Debye-Waller-Faktoren f_T^{Cr} und $f_A^{\text{Ge}^{++}}$ der in Gleichung (I4.4) gezeigten Temperaturabhängigkeit folgen, ist die theoretische Abhängigkeit der maximalen Resonanzabsorption von der Target- und Absorbertemperatur bekannt (Abschnitt I4). Im Fall a) ergibt ein least-squares-fit die Parameter $\eta f_T^{\text{Cr}}(89^\circ \text{K})$ und $\theta_A^{\text{Ge}^{++}}$. Unter Verwendung von θ_A^{Ge} liefert im Fall B) ein least-squares-fit die Werte für die Parameter η und f_T^{Cr} . Die numerischen Resultate der Fits sind in Tabelle 2 enthalten.

Die Debye-Waller-Faktoren $f_A^{\text{GeO}_2}$ und f_A^{GeSe} wurden errechnet (Tabelle 2), indem man in Gleichung (I4.3) für f_T^{Cr} den

+) Das Vorliegen reiner Ionenbindung beim Ge(II)Se mag nicht ganz zutreffen. So beträgt die Differenz der Elektronegativitäten nur $E(\text{Selen}) - E(\text{Germanium}) = 0,6$.²¹ Die Hartree-Slater-Rechnung für die Konfiguration $\text{Ge}(4s^2 4p^2)$ führt jedoch zu fast der gleichen Elektronendichte wie die bisher zugrundegelegte Konfiguration $\text{Ge}(4s^2 4p^0)$.

++) Wie in Abschnitt I4 sollen die Exponenten der Debye-Waller-Faktoren f_T und f_A die Umgebung des ^{73}Ge Kerns zur Zeit der γ -Emission bzw. γ -Absorption bedeuten. Die rein formal zu den Debye-Waller-Faktoren gehörigen Debye-Temperaturen θ werden analog bezeichnet.

aus α) gewonnenen Wert und für die maximale Resonanzabsorption M die gefittete Linienhöhe des entsprechenden Transmissionsspektrums einsetzt.

Da der Spin des angeregten Zustands nicht genau bekannt ist, sind sämtliche Rechnungen für $j_a = 7/2$ und $j_a = 11/2$ als Spin des angeregten Zustandes des ^{73}Ge Kerns durchgeführt.

	f_A^{Ge}	f_A^{GeSe}	$f_A^{\text{GeO}_2}$	$f_A^{\text{GeCr}_9}$	f_T^{Cr}
$j_a = 7/2$	$3,5 \pm 0,8$	$0,28 \pm 0,09$	$3,9 \pm 1,4$	$12,8 \pm 1,1$	$11,1 \pm 2,9$
$j_a = 11/2$	$3,0 \pm 0,6$	$0,22 \pm 0,07$	$3,4 \pm 1,3$	$11,5 \pm 1,0$	$10,9 \pm 2,8$

	θ_A^{Ge}	θ_A^{GeSe}	$\theta_A^{\text{GeO}_2}$	$\theta_A^{\text{GeCr}_9}$	θ_T^{Cr}
$j_a = 7/2$	263 ± 11	188 ± 8	268 ± 21	363 ± 11	345 ± 28
$j_a = 11/2$	256 ± 10	183 ± 7	261 ± 20	350 ± 10	344 ± 28

$$\eta(j_a = 7/2) = 65,7 \pm 22,5$$

$$\eta(j_a = 11/2) = 56,0 \pm 19,2$$

Tabelle 2: Debye-Waller-Faktoren für 78 °K in %, Debye-Temperaturen in °K und Implantationsverhältnis in %

Aus der maximalen Resonanzabsorption und ihrer Abhängigkeit

von der Absorbertemperatur wurde ferner der Debye-Waller-Faktor eines GeCr_3 Absorbers bestimmt (Tabelle 2). Die Übereinstimmung mit f_{T}^{Gr} läßt schließen, daß die implantierten Germaniumatome im Gitter der Chromunterlage ebenso fest gebunden werden wie die Germaniumatome einer GeCr_3 Verbindung.

Der Debye-Waller-Faktor f_{A}^{Ge} eines ^{73}Ge Atoms im Germaniumabsorber kann mit Hilfe der harmonischen Gittertheorie aus thermodynamischen Daten berechnet werden. L. S. Salter ordnet f_{A}^{Ge} formal eine charakteristische Temperatur θ_{c} zu,²³ die für einen Germaniumabsorber mit Temperaturen über 80 °K ungefähr den Wert (298 ± 2) °K hat und mit der in Tabelle 2 gegebenen Debye-Temperatur $\theta_{\text{A}}^{\text{Ge}}$ übereinstimmen sollte. Die aus unseren Messungen abgeleitete Debye-Temperatur ist etwas kleiner.

4. Diskussion der Halbwertsbreiten

Mit Hilfe der Tabellen von S. Margulies ist eine Extrapolation der Halbwertsbreiten nach der Absorberdicke null möglich.¹⁷ Die Halbwertsbreiten sind zu vergleichen mit der Halbwertsbreite $2\Gamma_{\text{e}} = (2,5 \pm 0,2)$ mm/s, die man aus der elektronisch gemessenen Lebensdauer $\tau = (2,33 \pm 0,20) \times 10^{-9}$ s des angeregten Zustandes erhält.⁶ Das Verhältnis $\Gamma/2\Gamma_{\text{e}}$ hat für kristallines Germanium, Ge(II)Se und hexagonales GeO_2 als Absorber die Werte

$1,17 \pm 0,14$, $1,55 \pm 0,81$, $1,61 \pm 0,25$ für $j_{\text{a}} = 7/2$ bzw.
 $1,13 \pm 0,14$, $1,55 \pm 0,80$, $1,56 \pm 0,24$ für $j_{\text{a}} = 11/2$.

Die recht gute Übereinstimmung von Γ mit $2\Gamma_{\text{e}}$ rechtfertigt die bei den Rechnungen gemachte Annahme, daß keine merkliche Hyperfeinstrukturaufspaltung vorliegt.

Beim GeO_2 ist möglicherweise eine geringe elektrische Quadrupolaufspaltung vorhanden.

Literatur

- 1 G. Czjzek, J. L. C. Ford Jr., F. E. Obenshain, D. Seyboth, Phys. Letters 19, 673 (1966)
- 2 G. Czjzek, J. L. C. Ford Jr., J. C. Love, F. E. Obenshain, H. H. F. Wegener, Phys. Rev. Letters 18, 529 (1967)
- 3 K. Alder, A. Bohr, T. Huus, B. Mottelson, A. Winther, Rev. Mod. Phys. 28, 432 (1956)
- 4 H. Kilian, Diplomarbeit, Erlangen (1964)
- 5 R. C. Ritter, P. H. Stelson, F. K. McGowan, R. L. Robinson, Phys. Rev. 128, 2320 (1962)
- 6 R. E. Holland , F. J. Lynch, Phys. Rev. 121, 1464 (1961)
- 7 W. Booth, I. S. Grant, Nucl. Phys. 63, 481 (1965)
- 8 G. Goldring, R. Kalish, H. Spehl, Nucl. Phys. 80, 33 (1966)
- 9 L. Grodzins, R. Borchers, G. B. Hagemann, Phys. Letters 21, 214 (1966)
- 10 Horst Wegener, Der Mössbauereffekt und seine Anwendung in Physik und Chemie, Bibliographisches Institut, Mannheim (1965)
- 11 D. Seyboth, Doktorarbeit, Erlangen (1966)
- 12 D. A. Shirley, Rev. Mod. Phys. 36, 336 (1964)
- 13 D. R. Hartree, The Calculation of Atomic Structures, John Wiley and Sons, Inc., New York (1957)
- 14 Hans A. Bethe, Intermediate Quantum Mechanics, W. A. Benjamin, Inc., New York (1946)
- 15 C. W. Nestor, T. C. Tucker, T. A. Carlson, L. D. Roberts, F. B. Malik, C. Froese, Report ORNL-4027, UC-32-Mathematics and Computers, Oak Ridge, Tennessee, USA
- 16 E. Wigner, F. Seitz, Phys. Rev. 43, 804 (1933)
- 17 S. Margulies, Thesis, University of Illinois (1961)
- 18 D. Seyboth, F. E. Obenshain, G. Czjzek, Phys. Rev. Letters 14, 521 (1965)
- 19 J. J. Spijkerman et al., Mössbauereffect Methodology, Plenum Press, New York (1965)
- 20 A. F. Wells, Structural Inorganic Chemistry, Oxford, At the Clarendon Press (1962)
- 21 L. Pauling, Die Natur der chemischen Bindung, Verlag

- Chemie, Weinheim (1964)
- 22 L. Pauling, M. L. Huggins, Z. Krist. 87, 205 (1934)
 - 23 L. S. Salter, Adv. Phys. 14, 1 (1965)
 - 24 R. Zurmühl, Praktische Mathematik für Ingenieure und Physiker, Springer Verlag, Berlin (1965)
 - 25 J. Mathews and R. L. Walker, Mathematical Methods of Physics, W. A. Benjamin, Inc., New York (1964)
 - 26 J. C. Slater, Phys. Rev. 36, 57 (1930)
 - 27 R. E. Watson, A. J. Freeman, Phys. Rev. 124, 1117 (1961)
 - 28 H. H. F. Wegener, private Mitteilung
 - 29 G. D. Moak, private Mitteilung
 - 30 J. B. Gibson, A. N. Goland, M. Milgram, G. H. Vineyard, Phys. Rev. 120, 1229 (1960)
 - 31 C. Erginsoy, G. H. Vineyard, A. Englert, Phys. Rev. 133, A 595 (1964)
 - 32 C. Erginsoy, G. H. Vineyard, A. Shimizu, Phys. Rev. 139, A 118 (1965)
 - 33 F. Seitz, D. Turnbull, J. S. Koehler, Solid State Physics, Academic Press, Inc., Publishers, New York (1956)
 - 34 B. T. Kelly, Irradiation Damage to Solids, Pergamon Press, New York (1966)
 - 35 C.D. Moak, M. D. Brown, Phys. Rev. 149, 244 (1966)

Herr Prof. Dr. H. Wegener hat diese Arbeit angeregt und durch Diskussionen und Vorschläge viel zum Fortgang der Arbeit beigetragen. Ich bin ihm zu großem Dank verpflichtet. Den Herren Dr. G. Ischenko, Dr. D. Seyboth, Dipl.-Phys. H. Kilian und cand. phys. H. Jena danke ich für die gute Zusammenarbeit und freundliche Hilfe, Herrn Dr. J. Trebst für die Anfertigung verwendeter Unterprogramme.

Die Deutsche Forschungsgemeinschaft hat einen Teil der Mittel zur Durchführung dieser Arbeit bereitgestellt.

Anhang

Vorbemerkung

Die Programme I und II enthalten zwischen den Kommentaren "begin display" und "end display" Befehle, die es ermöglichen, Zwischenergebnisse auf dem Oszillographenschirm sichtbar zu machen, und dort mit Hilfe eines light pen Marken zu setzen und Ergebnisse auszudrucken.

Die in den Vielkanalanalysatoren gespeicherte Information wird mit einem Stanzer auf Lochstreifen herausgeholt. Die Subroutine NDREAD dient zum Einlesen dieser Streifen.

Programm I

Die Information des Vielkanalanalysators VKA2 wird gespeichert. Die zweite Gedächtnishälfte enthält das γ -Spektrum im Fenster des Einkanaldiskriminators EKD1. Addition beider Gedächtnishälften liefert ein γ -Spektrum. Im Bereich der 67,0 keV Linie wird der Untergrund durch ein Polynom zweiten Grades angenähert, das dem Untergrund rechts und links der Linie angepaßt ist. Damit ist für jeden Kanal das Verhältnis $l_k = (\text{echte } 67,0 \text{ keV Strahlung} + \text{Untergrund}) / (\text{echte } 67,0 \text{ keV Strahlung})$ bekannt. Mit Hilfe dieser Verhältnisse kann nunmehr der Korrekturfaktor $l = (\text{echte } 67,0 \text{ keV Strahlung} + \text{Untergrund im Fenster}) / (\text{echte } 67,0 \text{ keV Strahlung im Fenster})$ angegeben werden.

```
2WORD
DIMENSION W(256),GS(256),Y(256),A(4,4),P(4),D(4),
FR(4),Z(4,4),N(256)
98READ 1,103,I
IF(I)17,30,31
30FAC=10
GO TO 99
31FAC=1
GO TO 99
99PAUSE 7
CALL NDREAD(N,256)
DO 1 I=1,256
W(I)=N(I)
```

```

1W(I)=W(I)*FAC
PAUSE 7
CALL NDREAD(N,256)
DO 2 I=1,256
GS(I)=N(I)
GS(I)=GS(I)*FAC
2GS(I)=GS(I)+W(I)
17READ 1,103,I
IF(I)3,3,4
3DO 15 I=1,256
15Y(I)=GS(I)
GO TO 85
4DO 16 I=1,256
16Y(I)=W(I)
GO TO 85
CBEGIN DISPLAY
85READ 1,204,OMIN,OMAX
TRANS=1023/(OMAX-OMIN)
LHOR=(1-OMIN)*TRANS
DO 86 K=1,256
86N(K)=(Y(K)-OMIN)*TRANS
CALL MARKER(0,-1)
90LHORX=LHOR
CALL DISPLA(N,1,4)
CALL MARKER(LHORX,0)
CALL LISTEN(L)
IF(L)85,90,91
91LVER=512
CALL MARKER(0,1)
92CALL DISPLA(N,1,4)
CALL MARKER(LVER,0)
CALL LISTEN(L)
IF(L)93,92,89
93XLVER=LVER
EN=XLVER/4
WRITE 2,205,EN
GO TO 91
204FORMAT(2E12,4)
205FORMAT(E12,6)
CEND DISPLAY
89READ 1,103,I
IF(I)17,17,8
8READ 1,104,KL1,KL2,KR1,KR2,KWL,KWR
DO 9 K=1,3
B(K)=0
DO 9 J=1,3
9A(K,J)=0
DO 6 K=KR1,KR2
D(1)=1
D(2)=K
D(3)=K*K
DO 5 I=1,3
B(I)=B(I)+GS(K)*D(I)
DO 5 L=1,3
5A(I,L)=A(I,L)+D(I)*D(L)
6CONTINUE
DO 7 K=KL1,KL2

```

```

D(1)=1
D(2)=K
D(3)=K*K
DO 20 I=1,3
B(I)=B(I)+GS(K)*D(I)
DO 20 L=1,3
20A(I,L)=A(I,L)+D(I)*D(L)
7CONTINUE
ITER=1
DO 40 I=1,4
R(I)=0
A(I,4)=0
40A(4,I)=0
A(4,1)=1
A(1,4)=-1
41DO 42 I=1,3
DO 42 K=1,3
Z(I,K)=A(I+1,K+1)-A(1,K+1)*A(I+1,1)/A(1,1)
42CONTINUE
DO 50 I=1,3
DO 50 K=1,3
50A(I,K)=Z(I,K)
ITER=ITER+1
IF(ITER-3)41,41,43
43DO 44 I=1,3
DO 44 K=1,3
44R(I)=A(I,K)*B(K)+R(I)
DO 45 I=1,3
A(I,I)=ABSF(A(I,I))
45A(I,I)=SQRTF(A(I,I))
WRITE 2,200,(R(I),I=1,3)
WRITE 2,200,(A(I,I),I=1,3)
BG=0
TI=0
DO 25 L=KWL,KWR
TI=TI+W(L)
F=R(1)+L*(R(2)+L*R(3))
IF(F)22,23,23
23IF(GS(L)-F)24,25,25
25BG=BG+F*W(L)/GS(L)
SIG=TI-PG
SF=SIG/TI
WRITE 2,200,BG,SIG,SF
PAUSE 7
GO TO 98
22F=0
GO TO 23
24F=GS(L)
GO TO 25
103FORMAT(I3)
104FORMAT(6I4)
200FORMAT(3E12.6)
END

```

Programm II

Die Information des Vielkanalanalysators VKA1 wird gespeichert. Auf Wunsch werden die Daten mehrerer Lochstreifen addiert, und Kanäle paarweise zusammengefaßt. Anschließend wird der Inhalt entsprechender Kanäle der ersten Gedächtnishälfte durch die zweite dividiert. Zur Festlegung des Normierungsfaktors wird aus dem Inhalt beliebiger einzugebender Kanäle am rechten und linken Ende des Spektrums der arithmetische Mittelwert gebildet. Die statistischen Fehler des Transmissionsspektrums werden berechnet, und Absorptionsspektrum und statistische Fehler mit dem Untergrundkorrekturfaktor multipliziert. Die Ergebnisse können ausgeschrieben und ausgestanzt werden.

```
2WORD
DIMENSION S(256),Y(256),Z(256),N(256)
READ 1,103,I
IF(I)206,206,207
208CORR=SQRTF(CORR)
PAUSE 7
80CALL NDREAD (N,256)
DO 75 I=1,256
75S(I)=N(I)
PAUSE 7
CALL NDREAD (N,256)
DO 72 I=1,256
72Y(I)=N(I)
70READ 1,103,I
IF(I)71,71,69
PAUSE 7
69CALL NDREAD(N,256)
DO 73 I=1,256
73Z(I)=N(I)
DO 67 K=1,256
67S(K)=S(K)+Z(K)
PAUSE 7
CALL NDREAD(N,256)
DO 74 I=1,256
74Z(I)=N(I)
DO 68 K=1,256
68Y(K)=Y(K)+Z(K)
GO TO 70
71READ 1,103,I
IF(I)20,20,66
66DO 165 K=1,128
Y(K)=Y(2*K)+Y(2*K-1)
165S(K)=S(2*K)+S(2*K-1)
GO TO 71
20DO 60 K=1,256
Q=S(K)/Y(K)
E=SQRTF(1/S(K)+1/Y(K))
```

```

Y(K)=0
60S(K)=E
READ 1,104,KL1,KL2,KR1,KR2
SUML=SUMR=0
DO 61 K=KL1,KL2
61SUML=SUML+Y(K)
DO 62 K=KR1,KR2
62SUMR=SUMR+Y(K)
GMEAN=(SUML+SUMR)/(KL2-KL1+KR2-KR1+2)
DO 63 K=1,256
Y(K)=Y(K)/GMEAN
63S(K)=S(K)*Y(K)/CORR
READ 1,205,BACK
DO 99 K=1,256
S(K)=S(K)/BACK
99Y(K)=1-(1-Y(K))/BACK
CBEGIN DISPLAY
85READ 1,204,OMIN,OMAX
TRANS=1023/(OMAX-OMIN)
LHOR=(1-OMIN)*TRANS
DO 86 K=1,256
86N(K)=(Y(K)-OMIN)*TRANS
CALL MARKER(0,-1)
90LHORX=LHOR
CALL DISPLAY(N,1,4)
CALL MARKER(LHORX,0)
CALL LISTEN(L)
IF(L)85,90,91
91LVER=512
CALL MARKER(0,1)
92CALL DISPLAY(N,1,4)
CALL MARKER(LVER,0)
CALL LISTEN(L)
IF(L)93,92,89
93XLVER=LVER
EN=XLVER/4
WRITE 2,205,EN
GO TO 91
204FORMAT(2E12.4)
205FORMAT(E12.6)
CEND DISPLAY
89READ 1,103,I
IF(I)88,88,81
88DO 65 I=1,256,8
I8=I+7
65WRITE 2,201,(Y(K),K=I,I8)
WRITE 2,202,S(KL1),S(KL2),S(KR1),S(KR2)
81READ 1,100,M,NK
M=M+1
NK=NK+1
WRITE 4,203,(Y(K),K=M,NK)
PAUSE 77
WRITE 4,203,(S(K),K=M,NK)
READ 1,103,I
IF(I)82,82,81
82PAUSE 777
GO TO 80

```

```

103FORMAT(I3)
104FORMAT(4I4)
100FORMAT(2I4)
201 FORMAT (8F7.4)
202 FORMAT (4F7.4)
203FORMAT(10F7.4/)
206CORR=1
GO TO 208
207CORR=10
GO TO 208
END

```

Programm III

Das Programm II liefert n (z. B. $n = 88$) stochastisch unabhängige Werte Y_k mit mittleren Fehlern S_k , die vom Programm III gespeichert werden. Diesen Werten wird eine Lorentzkurve

$$(1) \quad F(k) = a_4 - \frac{a_1 a_2^2}{4(k - a_3)^2 + a_2^2} \quad k = M + 1 \dots M + n$$

mit den Parametern a_1, a_2, a_3, a_4 angepaßt. Dies ist gleichbedeutend mit der Forderung, die Parameter so zu bestimmen, daß die Summe χ^2 der gewichteten Abweichungsquadrate ein Minimum wird.

$$(2) \quad \chi^2 = \sum_{k=M+1}^{M+n} (Y_k - F(k))^2 / S_k^2$$

Die Bedingungsbedingungen lauten

$$(3) \quad \frac{\partial \chi^2}{\partial a_m} = 2 \sum_{k=M+1}^{M+n} \frac{(Y_k - F(k))}{S_k^2} \frac{\partial F(k)}{\partial a_m} = 0 \quad m = 1..4$$

Das vierdimensionale Gleichungssystem ist nur in einfacher Weise nach den Parametern auflösbar, wenn die Funktion $F(k)$ linear von allen Parametern abhängt. Dies ist nicht der Fall. Das Programm III verwendet daher zur Lösung folgendes Iterationsverfahren: Die Lorentzkurve wird durch eine Taylorreihe an den Schätzwerten $a_1^{(0)} \dots a_4^{(0)}$ der Parameter angenähert.

$$(4) \quad F(k, a_1 \dots a_4) \approx F(k, a_1^{(0)} \dots a_4^{(0)}) + \sum_{m=1}^4 \frac{\partial F}{\partial a_m}(k, a_1^{(0)} \dots a_4^{(0)}) \times (a_m - a_m^{(0)})$$

Mit $\frac{\partial F}{\partial a_m}(k, a_1^{(0)} \dots a_4^{(0)}) = D_{km} \quad m = 1 \dots 4$ lautet (3) somit

$$(5) \sum_{l=1}^4 \sum_{k=M+1}^{M+n} D_{km} D_{kl} (a_l - a_l^{(0)}) / S_k^2 = \sum_{k=M+1}^{M+n} D_{km} (Y_k - F(k, a_1^{(0)} \dots a_4^{(0)})) / S_k^2$$

Mit Hilfe der Matrix A und den Vektoren R und a

$$(6) A_{ml} = \sum_{k=M+1}^{M+n} D_{km} D_{kl} / S_k^2 \quad R_m = \sum_{k=M+1}^{M+n} D_{km} (Y_k - F(k, a_1^{(0)} \dots a_4^{(0)})) / S_k^2$$

schreibt sich (5) als

$$(7) A(a - a^{(0)}) = R$$

Das Gleichungssystem wird mit der inversen Matrix A^{-1} gelöst. Das Programm berechnet dazu A^{-1} durch pivotale Kondensation. Anschließend werden die verbesserten Parameterwerte

$$(8) a = A^{-1} R + a^{(0)}$$

berechnet, ausgedruckt und auf Wunsch für eine Iteration verwendet. Die Konvergenz des Verfahrens hängt von der Wahl der Parameterschätzwerte ab.

Die mittleren Fehler der Parameter n a c h dem Ausgleichen²⁴

$$(9) \sigma_{a_m} = (A_{mm}^{-1})^{1/2} (\chi_o^2/f)^{1/2} \quad f = n - 4$$

werden berechnet und ausgedruckt. A_{mm}^{-1} sind die Diagonalelemente der Matrix A^{-1} . Für χ_o^2 ist der χ^2 -Wert n a c h dem Ausgleichen einzusetzen.

Die Güte des Fits ermittelt das Programm durch einen χ^2 -Test.^{24,25} Die χ^2 -Verteilungsfunktion sei $F(\chi^2)$. Die Wahrscheinlichkeit ein $\chi^2 > \chi_o^2$ zu finden ist dann

$$(10) W(\chi^2 > \chi_o^2) = \int_{\chi_o^2}^{\infty} F(\chi^2) d\chi^2$$

Zur Berechnung der χ^2 -Wahrscheinlichkeit im Programm wird verwendet, daß für $f > 30$ die Größe $u = (2\chi^2)^{1/2} - (2f - 1)^{1/2}$ näherungsweise normal verteilt ist.²⁴

Die Wahrscheinlichkeit ergibt sich somit zu

$$(11) W(\chi^2 > \chi_o^2) \approx \frac{1}{2} \left(1 - \left(\frac{2}{\pi}\right)^{1/2} \int_0^u e^{-x^2/2} dx\right)$$

Zur Berechnung des Integrals wird die Reihenentwicklung

$$(12) \quad \left(\frac{2}{\pi}\right)^{1/2} \int_0^u e^{-x^2/2} dx \approx \left(\frac{2}{\pi}\right)^{1/2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(-1)^k}{(2k+1)k!2^k} u^{2k+1} = \sum_{k=0}^{\infty} A_k$$

$$(13) \quad \text{wo } A_0 = u \left(\frac{2}{\pi}\right)^{1/2} \quad A_k = -\frac{2k-1}{k(2k+1)} \left(\frac{u^2}{2}\right) A_{k-1}$$

verwendet (G. Czjzek, private Mitteilung). Die Summation wird ausgeführt bis $k = u^2 + 10$. Die Genauigkeit ist besser als 10^{-3} .

Die Testinterpretation ist folgendermaßen: Wurde eine Wahrscheinlichkeit $W < 1\%$ oder $W > 99\%$ ausgedrückt, so hat man entweder einen statistisch seltenen Fall gemessen, oder es liegen systematische Abweichungen vor.

```

DIMENSION Y(256),S(256),A(5,5),B(5),D(5),R(5),STDE(5),
SZ(5,5)
20READ 1,100,M,N
PAUSE 77
READ 3,101,(Y(K),K=M,N)
PAUSE 777
READ 3,101,(S(K),K=M,N)
PAUSE 7777
1READ 1,102,H,G,E,U
12DO 9 K=1,4
B(K)=0
DO 9 J=1,4
9A(K,J)=0
DO 6 K=M,N
T=S(K)+2
Q=4*(K-E)+2+G+2
F=U-(H*G+2)/Q
D(1)=- (G*G)/Q
RR=(8*H*G*(K-E))/Q+2
D(2)=-RR*(K-E)
D(3)=-RR*G
D(4)=1
DO 5 I=1,4
B(I)=B(I)+((Y(K)-F)*D(I))/T
DO 5 L=1,4
5A(I,L)=A(I,L)+D(I)*D(L)/1
6CONTINUE
ITER=1

```

```

DO 40 I=1,5
R(I)=0
A(I,5)=0
40A(5,I)=0
A(5,1)=1
A(1,5)=-1
41DO 42 I=1,4
DO 42 K=1,4
Z(I,K)=A(I+1,K+1)-A(1,K+1)*A(I+1,1)/A(1,1)
42CONTINUE
DO 50 I=1,4
DO 50 K=1,4
50A(I,K)=Z(I,K)
ITER=ITER+1
IF(ITER-4) 41, 41, 43
43DO 44 I=1,4
DO 44 K=1,4
44R(I)=A(I,K)*B(K)+R(I)
DO 45 I=1,4
A(I,I)=ABSF(A(I,I))
45A(I,I)=SQRTF(A(I,I))
WRITE 2,200,(R(I),I=1,4)
WRITE 2,200,(A(I,I),I=1,4)
H=H+R(1)
G=G+R(2)
E=E+R(3)
U=U+R(4)
WRITE 2,200,H,G,E,U
READ 1,103,I
IF(I) 1,12,11
11CONTINUE
READ 1,103,IFORK
IF(IFORK) 26,26,13
13CONTINUE
CCHI SQUARE TEST
HC=H
GC=G
EC=E
30X=0
DO 22 K=M,N
F=U-(HC*(G2=GC*GC))/(4*(EMK=(K-EC))*EMK+G2)
T=S(K)*S(K)
X=X+((Y(K)-F)*(Y(K)-F))/T
22CONTINUE
WRITE 2,101,X
CLIMIT=1/1000
PI=3.141593
UC=2*X
YC=(N-M-3)*2-1
QC=SQRTF(UC)-SQRTF(YC)
CRIT=X/(N-M-3)
IF(CRIT-1) 46,46,47
49FC=1
IF(QC-5) 31,31,24
31YC=2/PI
FC=UC-QC*SQRTF(YC)
YC=(QC*GC)/2
K=2*YC+10

```

```

DO 23 I=1,K
UC=-UC*YC*(2*I-1)/(I*(2*I+1))
FC=FC+UC
IF(ABSF(UC)-CLIMIT) 24,23,23
23CONTINUE
24FC=(1-FC)/2
WRITE 2,101,FC
READ 1,103,I
IF(I) 12,26,25
25READ 1,103,I
IF(I) 27,28,29
27READ 1,101,HC
GO TO 30
28READ 1,101,GC
GO TO 30
29READ 1,101,EC
GO TO 30
26DO 14 K=M,N
14Y(K)=U-(H*(G2=G*G))/(4*(EMK=(K-E))*EMK+G2)
DO 15 I=M,N,10
I5=I+9
15 WRITE 2,201,(Y(K),K=I,I5)
PAUSE 7777
GO TO 20
46WRITE 2,202
GO TO 49
47DO 48 I=1,4
48STDE(I)=A(I,I)*SQRTF(CRIT)
WRITE 2,200,(STDE(I),I=1,4)
GO TO 49
100 FORMAT(2I4)
101FORMAT(10F7.4/)
102FORMAT(4E10.4)
103 FORMAT(I3)
200FORMAT(4E12.6)
201FORMAT(10F7.4)
202FORMAT(10HCONSISTENT)
END

```

Lebenslauf

Ich wurde am 2. März 1938 in Dresden geboren und bin das erste von drei Kindern des Direktors Dr. Hellmuth Zimmermann und seiner Ehefrau Renate, geborene Küttner. Im September 1944 trat ich in die Volksschule in Dresden ein. An dem Realgymnasium in Nürnberg erhielt ich 1957 das Reifezeugnis.

Das Physikstudium begann ich im November 1957 an der Universität in Erlangen. In den Semesterferien war ich in Laboratorien verschiedener Firmen als Praktikant tätig. Im Mai 1961 legte ich in Erlangen die Vordiplomprüfung ab. Meine Diplomarbeit fertigte ich bei Professor Dr. H. Wegener im Physikalischen Institut an. Nach der Diplom-Hauptprüfung im Mai 1964 war ich wissenschaftliche Hilfskraft und ab 1. Juni 1965 Verwalter einer wissenschaftlichen Assistentenstelle bei Professor Dr. H. Wegener am Physikalischen Institut der Universität Erlangen - Nürnberg. In dieser Zeit ist die vorliegende Arbeit entstanden.

Am 7. 3. 1962 heiratete ich Fräulein Irma J. Svoboda. Am 8. 5. 1965 wurde unser Sohn Dirk Bernard und am 19. 4. 1967 unsere Tochter Heike Ellen geboren.

Erlangen, den 22. 9. 1967

Offsetdruck - Fotodruck

Josef Hogl

8520 Erlangen, Hauptstr. 109, (Nähe Martin-Luther-Platz,) Tel. 22990

Offsetdruck-Fotodruck

J. Hogl, 852 Erlangen, Hauptstr. 109, (Nähe Martin-Luther-Platz) Tel. 22990
